

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平8-92223

(43)公開日 平成8年(1996)4月9日

(51)Int.Cl.  
C 07 D 231/14  
A 01 N 43/08  
43/10  
43/40  
43/54

識別記号 庁内整理番号  
B  
B  
101 A  
A

F I

技術表示箇所

審査請求 未請求 請求項の数3 O.L (全20頁) 最終頁に統く

(21)出願番号 特願平6-231599

(71)出願人 000003126

(22)出願日 平成6年(1994)9月27日

三井東圧化学株式会社  
東京都千代田区霞が関三丁目2番5号

(72)発明者 吉川 幸宏  
千葉県茂原市東郷1144番地 三井東圧化学  
株式会社内

(72)発明者 富谷 完治  
千葉県茂原市東郷1144番地 三井東圧化学  
株式会社内

(72)発明者 川島 秀雄  
千葉県茂原市東郷1144番地 三井東圧化学  
株式会社内

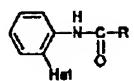
最終頁に統く

(54)【発明の名称】 ヘテロ環置換アニリン誘導体およびこれを有効成分とする農園芸用殺菌剤

(57)【要約】

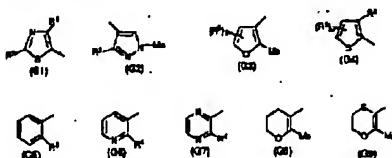
【目的】 本発明は優れた病害防除効果を示すと共に、作物に対しても安全な農園芸用殺菌剤を提供することを目的とする。

【構成】 一般式(1)で表わされるヘテロ環アニリン誘導体。

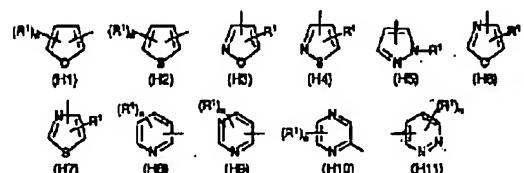


[但し、H e t は、下記式で表わされるH 1からH 11の複素環式基を表わし、

の環式基を意味し、



(式中、R<sup>2</sup> は炭素数1から4のアルキル基、ハロゲン原子または炭素数1から4のハロアルキル基を、R<sup>3</sup> は水素原子または炭素数1から4のアルキル基を、R<sup>4</sup> はハロゲン原子を意味する。) ]

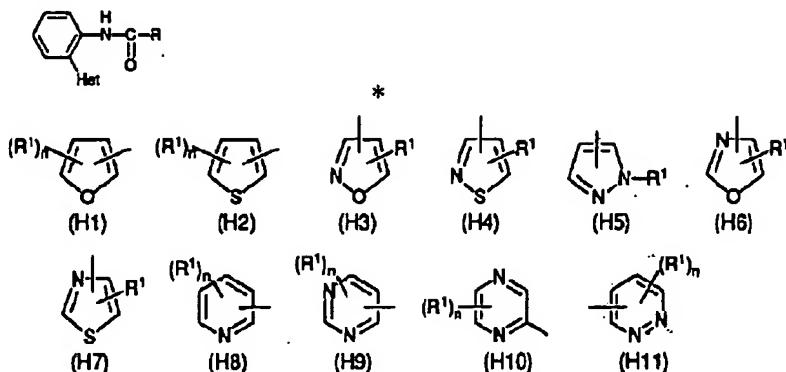


(式中、R<sup>1</sup> は水素原子、炭素数1から4のアルキル基、ハロゲン原子または炭素数1から4のハロアルキル基を意味する。) R は下記式で表わされるG 1からG 9

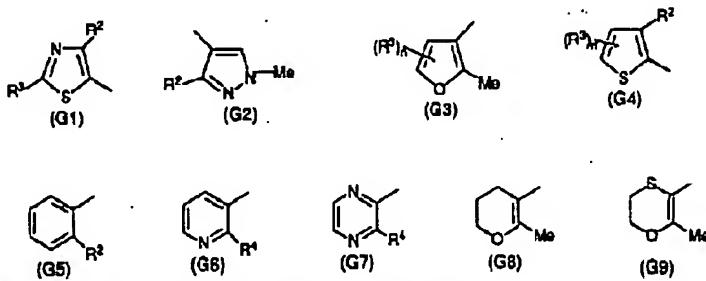
【特許請求の範囲】

【請求項1】 一般式(1) (化1) で表わされるヘテロ環アニリン誘導体。

【化1】



(式中、R<sup>1</sup> は水素原子、炭素数1から4のアルキル基、ハロゲン原子または炭素数1から4のハロアルキル基を意味する。) Rは下記式(化3)で表わされるG1※



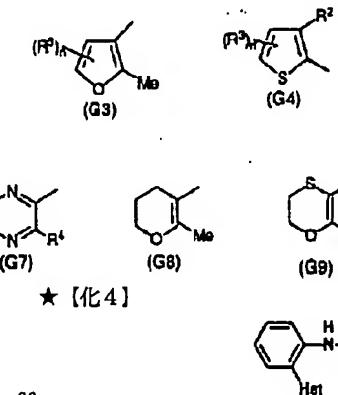
(式中、R<sup>2</sup> は炭素数1から4のアルキル基、ハロゲン原子または炭素数1から4のハロアルキル基を、R<sup>3</sup> は水素原子または炭素数1から4のアルキル基を、R<sup>4</sup> はハロゲン原子を意味する。)】

【請求項2】 一般式(1) (化4) で表わされるヘテロ環アニリン誘導体を有効成分として含有する農園芸用殺菌剤。

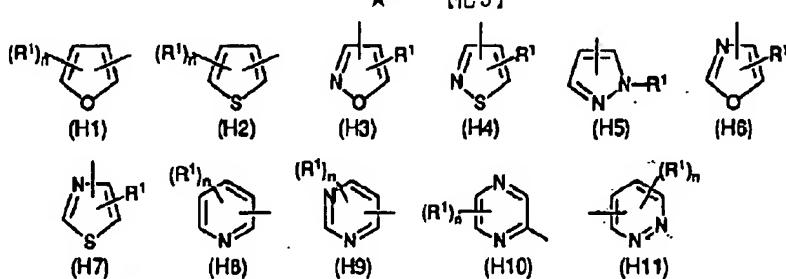
\* [但し、H et は、下記式(化2)で表わされるH1からH11の複素環式基を表わし、  
【化2】

※からG9の環式基を意味し、

【化3】



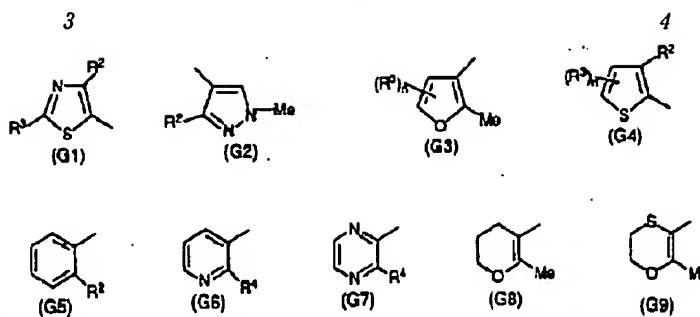
★【化4】

【但し、H et は、下記式(化5)で表わされるH1からH11の複素環式基を表わし、  
【化5】

(式中、R<sup>1</sup> は水素原子、炭素数1から4のアルキル基、ハロゲン原子または炭素数1から4のハロアルキル基を意味する。) Rは下記式(化6)で表わされるG1

からG9の環式基を意味し、  
【化6】

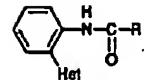
(3)



(式中、R<sup>2</sup> は炭素数1から4のアルキル基、ハロゲン原子または炭素数1から4のハロアルキル基を、R<sup>3</sup> は水素原子または炭素数1から4のアルキル基を、R<sup>4</sup> はハロゲン原子を意味する。)】

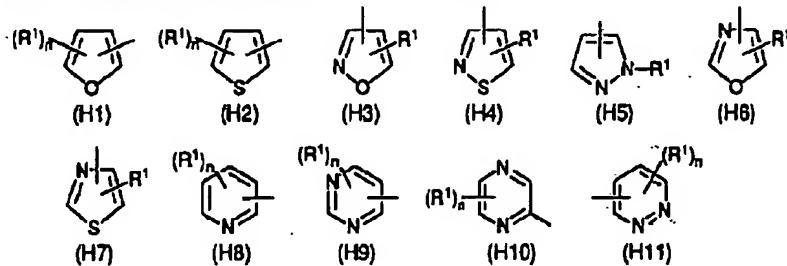
【請求項3】 一般式(1)～(化7)で表わされるヘテロ環アニリン誘導体を植物病原菌類またはその生息場所に施用することを特徴とする植物病害の防除方法。

\* [化7]

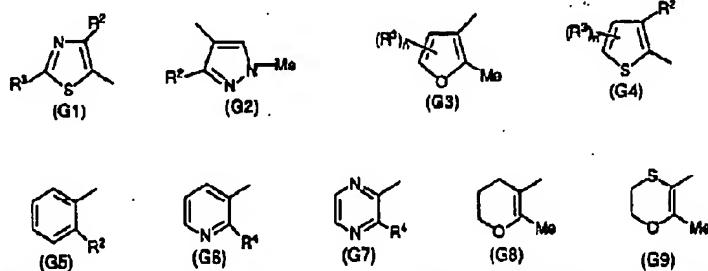


但し、Hetは、下記式(化8)で表わされるH1からH11の複素環式基を表わし、

【化8】



(式中、R<sup>1</sup> は水素原子、炭素数1から4のアルキル基、ハロゲン原子または炭素数1から4のハロアルキル基を意味する。) Rは下記式(化9)で表わされるG1～G9



(式中、R<sup>2</sup> は炭素数1から4のアルキル基、ハロゲン原子または炭素数1から4のハロアルキル基を、R<sup>3</sup> は水素原子または炭素数1から4のアルキル基を、R<sup>4</sup> はハロゲン原子を意味する。)

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、新規なヘテロ環置換アニリン誘導体、該誘導体を有効成分として含有する農園芸用殺菌剤および該誘導体を植物病原菌類またはその生息場所に施用することを特徴とする植物病害の防除方法に関する。

【0002】

【従来の技術】 従来から極めて多岐にわたるカルボン酸アミド類が除草剤、殺菌剤として生理活性を示すことが広く知られており、中でも安息香酸アミド、あるいはヘテロ環カルボン酸アミドについては、殺菌剤として市販

※からG9の環式基を意味し、  
【化9】

されている薬剤も多い。例えば、安息香酸アミドとして3'-イソプロピルオキシ-2-メチルベンズアニリド、あるいは $\alpha$ 、 $\alpha$ -トリフルオロ-3'-イソブロピルオキシ-2-トルアニリドはイネ紋枯病、ムギのさび病等に対する殺菌剤として市販されている。また、

40 ヘテロ環カルボン酸アミドとしては5, 6-ジヒドロ-2-メチル-1, 4-オキサチイン-3-カルボキシアニリド-4, 4-ジオキシドはキク白さび病、3, 4-ジヒドロ-6-メチル-2H-ピラン-5-カルボキシアニリドはムギのさび病に対する殺菌剤として市販されている。

【0003】 さらに、Pestic. Sci., 38, 1～7 (1993)には、チアゾールカルボン酸アミド類がコハク酸脱水素酵素の働きを阻害することにより、Rhizoctonia菌に対して活性を有すること、  
50 Aust. J. Chem., 36, 135～147 (1

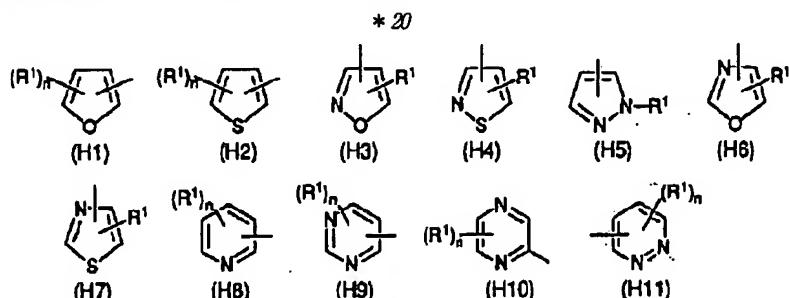
983) には、ピラゾールカルボン酸アミド類が同様に *Rhizoctonia* 菌に対して活性を有することが記載されている。

【0004】一方、特開平5-221, 994号公報および特開平6-199, 803号公報には、アミノ基のo-位にアルキル基、アルコキシ基、アルケニル基、アルケニルオキシ基、アルキニル基、アルキニルオキシ基、シクロアルキル基、シクロアルケニル基、シクロアルキルオキシ基、シクロアルケニルオキシ基またはフェニル基の置換した種々の芳香族カルボン酸アニリド類が灰色かび病 (Botrytis 菌) に効果を有することが記載されている。しかしながら、そこに具体的に開示された化合物について灰色かび病に対する殺菌活性を試験したが、防除効果が低く、実用的なものではなかつた。

[0005]

【発明が解決しようとする課題】従って、本発明の課題は、優れた病害防除効果を示すと共に、作物に対しても安全な農園芸用殺菌剤を提供することにある。

[0006]



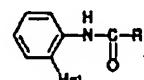
(式中、R' は水素原子、炭素数 1 から 4 のアルキル基、ハロゲン原子または炭素数 1 から 4 のハロアルキル基を意味する。)

Rは下記式(化12)で表わされるG1からG9の環式※

- \* 【課題を解決するための手段および作用】本発明者らは前記課題を解決するため、種々のカルボン酸アニリド誘導体について研究を進めた結果、アミノ基のo-位にある種のヘテロ環を有するカルボン酸アニリド誘導体が灰色かび病に対し強力な防除効果を示すを見いだし、本発明を完成した。即ち、本発明は一般式(1) (化10) で表わされるヘテロ環アニリン誘導体、該誘導体を有効成分として含有する農園芸用殺菌剤および該誘導体を植物病原菌類またはその生息場所に施用することを特徴とする植物病害の防除方法である。

[0003]

1410



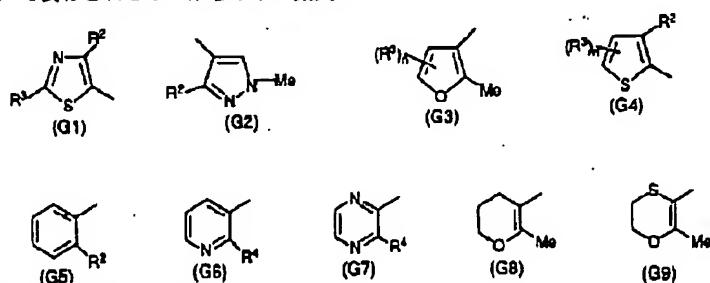
[但し、 $H_{et}$ は、下記式(化11)で表わされる $H_1$ から $H_{11}$ の複素環式基を表わし、

[0008]

〔化11〕

※基を意味し、

2 1000



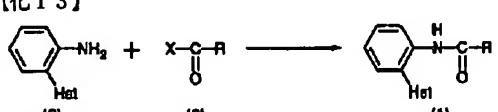
(式中、R<sup>2</sup> は炭素数1から4のアルキル基、ハロゲン原子または炭素数1から4のハロアルキル基を、R<sup>3</sup> は水素原子または炭素数1から4のアルキル基を、R<sup>4</sup> はハロゲン原子を意味する。) 1

本発明の一般式（1）で表わされるヘテロ環置換アニリン誘導体は新規な化合物であり、反応式（1）（化13）に示した公知の方法により、一般式（2）で表わされるヘテロ環置換アニリンと一般式（3）で表わされるカルボン酸ハライドとを溶融状態または溶媒中で反応させることにより製造できる。

※基を意味し、

7 1000

[E12]



(式中、He t および R は前記の意味を表わし、X はフッ素原子、塩素原子、臭素原子、または沃素原子を表わす。)

本反応に使用できる溶媒としては反応に不活性なものであればよく、例えば、ヘキサン、石油エーテル等の脂肪

族炭化水素、ベンゼン、トルエン、クロロベンゼン、アニソール等の芳香族類、ジオキサン、テトラヒドロフラン、ジエチルエーテル等のエーテル類、アセトニトリル、プロピオニトリルのようなニトリル類、酢酸エチル等のエステル類、ジクロロメタン、クロロホルム、1, 2-ジクロロエタン等のハロゲン化炭化水素類、ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド等の非プロトン性溶媒等があげられ、これらの混合溶媒も使用できる。

【0011】本反応はまた塩基の存在下に行ってもよく、塩基として例えば、アルカリ金属およびアルカリ土類金属の水酸化物、例えば水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水酸化カルシウム等；アルカリ金属、アルカリ土類金属の酸化物、例えば酸化カルシウム、酸化マグネシウム；アルカリ金属およびアルカリ土類金属の水素化物、例えば水素化ナトリウム、水素化カルシウム等；アルカリ金属のアミド、例えばリチウムアミド、ナトリウムアミド等；アルカリ金属およびアルカリ土類金属の炭酸塩、例えば炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム等；アルカリ金属およびアルカリ土類金属の炭酸水素塩、例えば炭酸水素ナトリウム、炭酸水素カリウム；アルカリ金属アルキル、例えばメチルリチウム、ブチルリチウム、フェニルリチウム、メチルマグネシウムクロライド；アルカリ金属およびアルカリ土類金属のアルコキシド、例えばナトリウムメトキシド、ナトリウムエトキシド、カリウム-*t*-ブロキシド、ジメトキシマグネシウム等；有機塩基類、例えばトリエチルアミン、ピリジン、N、N-ジメチルアニリン、N-メチルピベリジン、ルチジン、4-ジメチルアミノピリジン等があげられ、トリエチルアミン、ピリジンが特に好適に使用できる。これらの塩基の使用量は特に制限されるものではないが、好ましくは一般式(3)で表わされるカルボン酸クロライド類に対して5モル%から20モル%過剰に使用する。

【0012】一般式(2)で表わされるヘテロ環置換アニリン類と一般式(3)で表わされるカルボン酸クロライド類は一般的には等モル量使用するが、収率改善のため一方を他方に対して1モル%から20モル%過剰に使用することもある。反応温度は0～150℃であり、好ましくは0～40℃である。ヘテロ環置換アニリン誘導体の置換基R<sup>1</sup>として具体的には、水素原子、炭素数1から4のアルキル基であるメチル基、エチル基、イソプロピル基等、ハロゲン原子であるフッ素、塩素、臭素または沃素原子、炭素数1から4のハロアルキル基であるトリフルオロメチル基、ジフルオロメチル基、フルオロメチル基、トリクロロメチル基、ベンタフルオロエチル基があげられ、R<sup>2</sup>として具体的には、炭素数1から4のアルキル基であるメチル基、エチル基、イソプロピル基等、炭素数1から4のハロアルキル基であるトリフルオロメチル基、ジフルオロメチル基、フルオロメチル基、トリクロロメチル基またはベンタフルオロエチル基があげられ、R<sup>4</sup>として具体的には、ハロゲン原子であるフッ素、塩素、臭素または沃素原子があげられる。

【0013】Hetとして具体的には、任意の位置にアルキル基が置換していてもよいフリル基、例えば2-フリル、3-フリル、5-メチル-2-フリル、2-メチル-3-フリル基等；任意の位置にアルキル基が置換し

ていてもよいチエニル基、例えば2-チエニル、3-チエニル、5-メチル-2-チエニル、2-メチル-3-チエニル、3-メチル-2-チエニル、2、5-ジメチル-3-チエニル基、5-イソプロピル-2-チエニル基等；任意の位置にアルキル基が置換していてもよいイソオキサゾリル基、例えば3-イソオキサゾリル、4-イソオキサゾリル、5-イソオキサゾリル、5-メチル-3-イソオキサゾリル、3-メチル-5-イソオキサゾリル基等；任意の位置にアルキル基が置換していてもよいイソチアゾリル基、例えば3-イソチアゾリル、4-イソチアゾリル、5-イソチアゾリル、5-メチル-3-イソチアゾリル、3-メチル-5-イソチアゾリル基、4-メチル-3-イソチアゾリル、3-メチル-4-イソチアゾリル基等；任意の位置にアルキル基が置換していてもよいピラゾリル基、例えば1-メチル-3-ピラゾリル、1-メチル-4-ピラゾリル、1-メチル-5-ピラゾリル、3-ピラゾリル、5-ピラゾリル基等；任意の位置にアルキル基が置換していてもよいオキサゾリル基、例えば2-オキサゾリル、4-オキサゾリル、5-オキサゾリル、2-メチル-4-オキサゾリル、2-メチル-5-オキサゾリル、4-メチル-5-オキサゾリル基等；任意の位置にアルキル基が置換していてもよいチアゾリル基、例えば2-チアゾリル、4-チアゾリル、5-チアゾリル、2-メチル-4-チアゾリル、2-メチル-5-チアゾリル、4-メチル-5-チアゾリル、5-メチル-4-チアゾリル基等；任意の位置にアルキル基が置換していてもよいビリジル基、例えば2-ビリジル、3-ビリジル、4-ビリジル、6-メチル-2-ビリジル基等；任意の位置にアルキル基が置換していてもよいビリミジニル基、例えば2-ビリミジニル、4-ビリミジニル、5-ビリミジニル、4、6-ジメチル-2-ビリミジニル基等；任意の位置にアルキル基が置換していてもよいピラジニル基、例えば2-ピラジニル、3-メチル-2-ピラジニル基等；任意の位置にアルキル基が置換していてもよいピリダジニル基、例えば4-メチル-3-ピリダジニル、3-メチル-4-ピリダジニル基等があげられる。

【0014】一方、R<sup>2</sup>として具体的には、炭素数1から4のアルキル基であるメチル基、エチル基、イソプロピル基等、ハロゲン原子であるフッ素、塩素、臭素または沃素原子、炭素数1から4のハロアルキル基であるトリフルオロメチル基、ジフルオロメチル基、フルオロメチル基、トリクロロメチル基、ベンタフルオロエチル基があげられ、R<sup>3</sup>として具体的には、炭素数1から4のアルキル基であるメチル基、エチル基、イソプロピル基等、炭素数1から4のハロアルキル基であるトリフルオロメチル基、ジフルオロメチル基、フルオロメチル基、トリクロロメチル基またはベンタフルオロエチル基があげられ、R<sup>4</sup>として具体的には、ハロゲン原子であるフッ素、塩素、臭素または沃素原子があげられる。

【0015】一方、Rとして具体的には、4位にトリフルオロメチル基、ジフルオロメチル基、塩素原子、臭素原子または沃素原子が置換し、2位はメチル基が置換していてもよい5-チアゾリル基、例えば2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル基、2-メチル-4-ジフルオロメチル-5-チアゾリル基、2-メチル-4-ヨード-5-チアゾリル基、4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル基等；3位にトリフルオロメチル基、ジフルオロメチル基、塩素原子、臭素原子または沃素原子が置換した1-メチル-4-ピラゾリル基；例えば1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ピラゾリル基、1-メチル-3-ジフルオロメチル-4-ピラゾリル基、1-メチル-3-クロロ-4-ピラゾリル基、1-メチル-3-ヨード-4-ピラゾリル基、3-トリフルオロメチル-4-ピラゾリル基等；4位および/または5位にメチルが置換していてもよい2-メチル-3-フリル基、例えば2-メチル-3-フリル基、2、5-ジメチル-3-フリル基、2、4、5-トリメチル-3-フリル基等；2位にメチル基、塩素原子、臭素原子または沃素原子が置換していてもよく、5位にメチルが置換していて＊

第1表

H e t	R
2-フリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
2-フリル	2-メチル-4-ジフルオロメチル-5-チアゾリル
2-フリル	4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
2-フリル	4-ヨード-5-チアゾリル
2-フリル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ピラゾリル
2-フリル	1-メチル-3-ヨード-4-ピラゾリル
2-フリル	2-メチル-3-フリル
2-フリル	2,5-ジメチル-3-フリル
2-フリル	3-メチル-2-チエニル
2-フリル	2-クロロフェニル
2-フリル	2-クロロ-3-ピリジル
2-フリル	3-クロロ-2-ピラジニル
2-フリル	2-メチル-5,6-ジヒドロピラン-3-イル
2-フリル	2-メチル-5,6-ジヒドロ-1,4-オキサチイン-3-イル
3-フリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
3-フリル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ピラゾリル
3-フリル	2-クロロフェニル
3-フリル	2-クロロ-3-ピリジル
3-フリル	3-クロロ-2-ピラジニル
3-フリル	2-メチル-5,6-ジヒドロ-1,4-オキサチイン-3-イル

【0017】

第1表(つづき)

【表2】

5-メチル-2-ブリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
5-メチル-2-ブリル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ピラゾリル
5-メチル-3-ブリル	2-クロロフェニル
2-チエニル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
2-チエニル	2-メチル-4-ジフルオロメチル-5-チアゾリル
2-チエニル	4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
2-チエニル	4-ヨード-5-チアゾリル
2-チエニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ピラゾリル
2-チエニル	1-メチル-3-ヨード-4-ピラゾリル
2-チエニル	2-メチル-3-ブリル
2-チエニル	2, 5-ジメチル-3-ブリル
2-チエニル	3-メチル-2-チエニル
2-チエニル	2-クロロフェニル
2-チエニル	2-クロロ-3-ピリジル
2-チエニル	3-クロロ-2-ピラジニル
2-チエニル	2-メチル-5, 6-ジヒドロピラン-3-イル
2-チエニル	2-メチル-5, 6-ジヒドロ-1, 4-オキサチイン-3-イル
3-チエニル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
3-チエニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ピラゾリル
3-チエニル	2-クロロフェニル
3-チエニル	2-クロロ-3-ピリジル

[0018]

## 【表3】

第1表 (つづき)

H e t	R
3-チエニル	3-クロロ-2-ピラジニル
3-チエニル	2-メチル-5, 6-ジヒドロ-1, 4-オキサチイン-3-イル
5-メチル-2-チエニル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
5-メチル-2-チエニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ピラゾリル
5-メチル-2-チエニル	2-クロロフェニル
5-メチル-2-チエニル	2-クロロ-3-ピリジル
5-メチル-2-チエニル	3-クロロ-2-ピラジニル
5-メチル-2-チエニル	2-メチル-5, 6-ジヒドロ-1, 4-オキサチイン-3-イル
5-メチル-4-チエニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ピラゾリル
3-メチル-2-チエニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ピラゾリル
4-メチル-3-チエニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ピラゾリル
4-メチル-2-チエニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ピラゾリル
2-エチル-3-チエニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ピラゾリル
5-イソプロピル-2-チエニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ピラゾリル
3-イソオキサゾリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
3-イソオキサゾリル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ピラゾリル
3-イソオキサゾリル	1-メチル-3-ヨード-4-ピラゾリル
3-イソオキサゾリル	2-メチル-3-ブリル
3-イソオキサゾリル	3-メチル-2-チエニル
3-イソオキサゾリル	2-クロロフェニル
3-イソオキサゾリル	2-クロロ-3-ピリジル

【0019】

\* \* 【表4】

第1表 (つづき)

H e t	R
3-イソキサソリル	3-クロロ-2-ビラジニル
3-イソキサソリル	2-メチル-5, 6-ジヒドロ-1, 4-オキサチニ-3-イル
4-イソキサソリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアソリル
4-イソキサソリル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ビラソリル
4-イソキサソリル	1-メチル-3-ヨト-4-ビラソリル
4-イソキサソリル	2-メチル-3-フリル
4-イソキサソリル	3-メチル-2-チエニル
4-イソキサソリル	2-クロロフェニル
4-イソキサソリル	2-クロロ-3-ビリジル
4-イソキサソリル	3-クロロ-2-ビラジニル
4-イソキサソリル	2-メチル-5, 6-ジヒドロ-1, 4-オキサチニ-3-イル
4-イソキサソリル	2-メチル-5, 6-ジヒドロ-1, 4-オキサチニ-3-イル
5-イソキサソリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアソリル
5-イソキサソリル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ビラソリル
5-イソキサソリル	1-メチル-3-ヨト-4-ビラソリル
5-イソキサソリル	2-メチル-3-フリル
5-イソキサソリル	3-メチル-2-チエニル
5-イソキサソリル	2-クロロフェニル
5-イソキサソリル	2-クロロ-3-ビリジル
5-イソキサソリル	3-クロロ-2-ビラジニル
5-イソキサソリル	2-メチル-5, 6-ジヒドロ-1, 4-オキサチニ-3-イル

【0020】

【表5】

第1表 (つづき)

H e t	R
5-メチル-3-イソキサソリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアソリル
5-メチル-3-イソキサソリル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ビラソリル
5-メチル-3-イソキサソリル	2-クロロフェニル
3-イソチアソリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアソリル
3-イソチアソリル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ビラソリル
3-イソチアソリル	1-メチル-3-ヨト-4-ビラソリル
3-イソチアソリル	2-メチル-3-フリル
3-イソチアソリル	3-メチル-2-チエニル
3-イソチアソリル	2-クロロフェニル
3-イソチアソリル	2-クロロ-3-ビリジル
3-イソチアソリル	3-クロロ-2-ビラジニル
3-イソチアソリル	2-メチル-5, 6-ジヒドロ-1, 4-オキサチニ-3-イル
3-イソチアソリル	2-メチル-5, 6-ジヒドロ-1, 4-オキサチニ-3-イル
4-イソチアソリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアソリル
4-イソチアソリル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ビラソリル
4-イソチアソリル	1-メチル-3-ヨト-4-ビラソリル
4-イソチアソリル	2-メチル-3-フリル

15

4-イソチアゾリル	3-メチル-2-チエニル
4-イソチアゾリル	2-クロロフェニル
4-イソチアゾリル	2-クロロ-3-ビリジル
4-イソチアゾリル	3-クロロ-2-ビラジニル

16

\* \* 【表6】

第1表 (つづき)

【0021】

H e t	R
4-イソチアゾリル	2-メチル-5,6-ジヒドロビラン-3-イル
4-イソチアゾリル	2-メチル-5,6-ジヒドロ-1,4-オキサチイン-3-イル
5-イソチアゾリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
5-イソチアゾリル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ビラゾリル
5-イソチアゾリル	1-メチル-3-ヨード-4-ビラゾリル
5-イソチアゾリル	2-メチル-3-ブリル
5-イソチアゾリル	3-メチル-2-チエニル
5-イソチアゾリル	2-クロロフェニル
5-イソチアゾリル	2-クロロ-3-ビリジル
5-イソチアゾリル	3-クロロ-2-ビラジニル
5-イソチアゾリル	2-メチル-5,6-ジヒドロビラン-3-イル
5-イソチアゾリル	2-メチル-5,6-ジヒドロ-1,4-オキサチイン-3-イル
5-メチル-3-イソチアゾリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
5-メチル-3-イソチアゾリル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ビラゾリル
5-メチル-3-イソチアゾリル	2-クロロフェニル
1-メチル-3-ビラゾリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
1-メチル-3-ビラゾリル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ビラゾリル
1-メチル-3-ビラゾリル	1-メチル-3-ヨード-4-ビラゾリル
1-メチル-3-ビラゾリル	2-メチル-3-ブリル
1-メチル-3-ビラゾリル	3-メチル-2-チエニル
1-メチル-3-ビラゾリル	2-クロロフェニル

【0022】

【表7】

第1表 (つづき)

H e t	R
1-メチル-3-ビラゾリル	2-クロロ-3-ビリジル
1-メチル-3-ビラゾリル	3-クロロ-2-ビラジニル
1-メチル-3-ビラゾリル	2-メチル-5,6-ジヒドロビラン-3-イル
1-メチル-3-ビラゾリル	2-メチル-5,6-ジヒドロ-1,4-オキサチイン-3-イル
1-メチル-5-ビラゾリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
1-メチル-5-ビラゾリル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ビラゾリル
1-メチル-5-ビラゾリル	1-メチル-3-ヨード-4-ビラゾリル
1-メチル-5-ビラゾリル	2-クロロフェニル
1-メチル-5-ビラゾリル	2-クロロ-3-ビリジル
1-メチル-5-ビラゾリル	3-クロロ-2-ビラジニル
1-メチル-5-ビラゾリル	2-メチル-5,6-ジヒドロ-1,4-オキサチイン-3-イル
2-オキサリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
2-オキサリル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ビラゾリル

(10)

特開平8-92223

17

2-オキサリル	1-メチル-3-ヨード-4-ピラソリル
2-オキサリル	2-メチル-3-ブリル
2-オキサリル	3-メチル-2-チニル
2-オキサリル	2-クロロフェニル
2-オキサリル	2-クロロ-3-ピリジル
2-オキサリル	3-クロロ-2-ピラジニル
2-オキサリル	2-メチル-5,6-ジヒドロ-1,4-オキサイン-3-イル
4-オキサリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアソリル

18

1-メチル-3-ヨード-4-ピラソリル	1-メチル-3-ヨード-4-ピラソリル
2-メチル-3-ブリル	2-メチル-3-ブリル
3-メチル-2-チニル	3-メチル-2-チニル
2-クロロフェニル	2-クロロフェニル
2-クロロ-3-ピリジル	2-クロロ-3-ピリジル
3-クロロ-2-ピラジニル	3-クロロ-2-ピラジニル
2-メチル-5,6-ジヒドロ-1,4-オキサイン-3-イル	2-メチル-5,6-ジヒドロ-1,4-オキサイン-3-イル
2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアソリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアソリル

【0023】

\*10\*【表8】

第1表(つづき)

H e t	R
4-オキサリル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ピラソリル
4-オキサリル	1-メチル-3-ヨード-4-ピラソリル
4-オキサリル	2-メチル-3-ブリル
4-オキサリル	3-メチル-2-チニル
4-オキサリル	2-クロロフェニル
4-オキサリル	2-クロロ-3-ピリジル
4-オキサリル	3-クロロ-2-ピラジニル
4-イソオキサリル	2-メチル-5,6-ジヒドロ-1,4-オキサイン-3-イル
5-オキサリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアソリル
5-オキサリル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ピラソリル
5-オキサリル	2-クロロフェニル
5-オキサリル	2-クロロ-3-ピリジル
5-オキサリル	3-クロロ-2-ピラジニル
5-オキサリル	2-メチル-5,6-ジヒドロ-1,4-オキサイン-3-イル
2-メチル-3-オキサリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアソリル
2-チアソリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアソリル
2-チアソリル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ピラソリル
2-チアソリル	1-メチル-3-ヨード-4-ピラソリル
2-チアソリル	2-メチル-3-ブリル
2-チアソリル	3-メチル-2-チニル
2-チアソリル	2-クロロフェニル

【0024】

【表9】

第1表(つづき)

H e t	R
2-チアソリル	2-クロロ-3-ピリジル
2-チアソリル	3-クロロ-2-ピラジニル
2-チアソリル	2-メチル-5,6-ジヒドロ-1,4-オキサイン-3-イル
4-チアソリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアソリル
4-チアソリル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ピラソリル
4-チアソリル	1-メチル-3-ヨード-4-ピラソリル
4-チアソリル	2-メチル-3-ブリル
4-チアソリル	3-メチル-2-チニル
4-チアソリル	2-クロロフェニル

4-チアゾリル	2-クロロ-3-ピリジル
4-チアゾリル	3-クロロ-2-ピラジニル
4-チアゾリル	2-メチル-5,6-ジヒドロ-1,4-オキサチニ-3-イル
5-チアゾリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
5-チアゾリル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ピラゾリル
5-チアゾリル	2-クロロフェニル
5-チアゾリル	2-クロロ-3-ピリジル
5-チアゾリル	3-クロロ-2-ピラジニル
5-チアゾリル	2-メチル-5,6-ジヒドロ-1,4-オキサチニ-3-イル
2-メチル-4-チアゾリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
2-ピリジル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
2-ピリジル	4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル

【0025】

\* \* 【表10】

第1表 (つづき)

H e t	R
2-ピリジル	4-ヨト-5-チアゾリル
2-ピリジル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ピラゾリル
2-ピリジル	1-メチル-3-ヨト-4-ピラゾリル
2-ピリジル	2-メチル-3-ブリル
2-ピリジル	3-メチル-2-エニル
2-ピリジル	2-クロロフェニル
2-ピリジル	2-クロロ-3-ピリジル
2-ピリジル	3-クロロ-2-ピラジニル
2-ピリジル	2-メチル-5,6-ジヒドロ-1,4-オキサチニ-3-イル
3-ピリジル	2-クロロ-3-ピリジル
4-ピリジル	2-クロロ-3-ピリジル
6-メチル-2-ピリジル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
6-メチル-2-ピリジル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ピラゾリル
2-ピリミジニル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
2-ピリミジニル	4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
2-ピリミジニル	4-ヨト-5-チアゾリル
2-ピリミジニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ピラゾリル
2-ピリミジニル	1-メチル-3-ヨト-4-ピラゾリル
2-ピリミジニル	2-メチル-3-ブリル
2-ピリミジニル	3-メチル-2-エニル
2-ピリミジニル	2-クロロフェニル

【0026】

【表11】

第1表 (つづき)

H e t	R
2-ピリミジニル	2-クロロ-3-ピリジル
2-ピリミジニル	3-クロロ-2-ピラジニル
2-ピリミジニル	2-メチル-5,6-ジヒドロ-1,4-オキサチニ-3-イル
4-ピリミジニル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
4-ピリミジニル	4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル

21

4-ヒリミジニル	4-エト-5-チアゾリル
4-ヒリミジニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒラゾリル
4-ヒリミジニル	1-メチル-3-エト-4-ヒラゾリル
4-ヒリミジニル	2-メチル-3-フリル
4-ヒリミジニル	3-メチル-2-チエニル
4-ヒリミジニル	2-クロロフェニル
4-ヒリミジニル	2-クロロ-3-ヒリジル
4-ヒリミジニル	3-クロロ-2-ヒラジニル
4-ヒリミジニル	2-メチル-5, 6-ジヒドロ-1, 4-オキサイン-3-イル
5-ヒリミジニル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
5-ヒリミジニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒラゾリル
5-ヒリミジニル	1-メチル-3-エト-4-ヒラゾリル
5-ヒリミジニル	2-メチル-3-フリル
5-ヒリミジニル	3-メチル-2-チエニル
5-ヒリミジニル	2-クロロフェニル
5-ヒリミジニル	2-クロロ-3-ヒリジル

22

4-ヒリミジニル	4-ヒドロ-2-ヒラジニル
4-ヒリミジニル	2-メチル-5, 6-ジヒドロ-1, 4-オキサイン-3-イル
4-ヒリミジニル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
4-ヒリミジニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒラゾリル
4-ヒリミジニル	1-メチル-3-エト-4-ヒラゾリル
4-ヒリミジニル	2-メチル-3-フリル
4-ヒリミジニル	3-メチル-2-チエニル
4-ヒリミジニル	2-クロロフェニル
4-ヒリミジニル	2-クロロ-3-ヒリジル

【0027】

\* \* 【表12】

第1表 (つづき)

H e t	R
5-ヒリミジニル	3-クロロ-2-ヒラジニル
5-ヒリミジニル	2-メチル-5, 6-ジヒドロ-1, 4-オキサイン-3-イル
4, 6-ジメチル-2-ヒリミジニル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
4, 6-ジメチル-2-ヒリミジニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒラゾリル
2-ヒラジニル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
2-ヒラジニル	4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
2-ヒラジニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒラゾリル
2-ヒラジニル	1-メチル-3-エト-4-ヒラゾリル
2-ヒラジニル	2-メチル-3-フリル
2-ヒラジニル	3-メチル-2-チエニル
2-ヒラジニル	2-クロロフェニル
2-ヒラジニル	2-クロロ-3-ヒリジル
2-ヒラジニル	3-クロロ-2-ヒラジニル
2-ヒラジニル	2-メチル-5, 6-ジヒドロ-1, 4-オキサイン-3-イル
3-メチル-2-ヒラジニル	2-クロロ-3-ヒリジル
5, 6-ジメチル-2-ヒラジニル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
2-ヒリタジニル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
2-ヒリタジニル	4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
2-ヒリタジニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒラゾリル
2-ヒリタジニル	1-メチル-3-エト-4-ヒラゾリル
2-ヒリタジニル	2-クロロフェニル

【0028】

【表13】

第1表 (つづき)

H e t	R
2-ヒリタジニル	2-メチル-3-フリル

2-ビ'リタ'ジ'ニル  
2-ビ'リタ'ジ'ニル  
2-ビ'リタ'ジ'ニル  
2-ビ'リタ'ジ'ニル  
2-ビ'リタ'ジ'ニル

3-メチ-2-チエ'ニル  
2-クロロエ'ニル  
2-クロ-3-ビ'リジ'ル  
3-クロ-2-ビ'ラジ'ニル  
2-メチ-5,6-ジヒド-1,4-オキサイン-3-イル

【0029】本発明は一般式(1)で表わされる化合物は、キュウリ、トマト、イチゴ、ブドウ等の灰色かび病(*Botrytis cinerea*)の他、ウリ類のうどんこ病(*Sphaerotheca fuliginea*)、ムギ類のうどんこ病(*Erysiphe graminis* f. sp. *hordei*, f. sp. *tritici*)、イチゴうどんこ病(*Sphaerotheca humuli*)、ブドウうどんこ病(*Uncinula necator*)、リンゴうどんこ病(*Podosphaera leucotricha*)、リンゴ黒星病(*Venturia inaequalis*)、ナシ黒星病(*Venturia nashicola*)、リンゴ赤星病(*Gymnosporangium yamadae*)、ナシ黒斑病(*Alternaria kikuchiana*)、リンゴ斑点落葉病(*Alternaria malii*)、ムギ類のさび病(*Puccinia striiformis*, *P. graminis*, *P. recondita*, *P. hordei*)等に対し優れた防除効果を示す。

【0030】本発明に係わる一般式(1)で表わされる化合物を農園芸用殺菌剤として使用する場合は、処理する植物に対して原体をそのまま使用してもよいが、一般には不活性な液体担体または固体担体と混合し、通常用いられる製剤形態である粉剤、水和剤、フロワブル剤、乳剤、粒剤およびその他の一般に慣用される形態の製剤として使用される。更に製剤上必要ならば補助剤を添加することもできる。ここでいう担体とは、処理すべき部位への有効成分の到達を助け、また有効成分化合物の貯蔵、輸送、取扱いを容易にするために配合される合成または天然の無機または有機物質を意味する。担体としては、通常農園芸用薬剤に使用されるものであるならば固体または液体のいずれでも使用でき、特定のものに限定されるものではない。

【0031】例えば、固体担体としては、モンモリロナイト、カオリナイト等の粘土類、珪藻土、白土、タルク、バーミュキュライト、石膏、炭酸カルシウム、シリカゲル、硫安等の無機物質、大豆粉、鋸屑、小麦粉等の植物性有機物質および尿素等があげられる。液体担体としては、トルエン、キシレン、クメン等の芳香族炭化水素類、ケロシン、鉱油などのパラフィン系炭化水素類、アセトン、メチルエチルケトンなどのケトン類、ジオキサン、ジエチレングリコールジメチルエーテルなどのエーテル類、メタノール、エタノール、プロパンノール、エチレングリコールなどのアルコール類、ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシドおよび水等があげられる。

【0032】更に本発明化合物の効力を増強するため、製剤の剤型、適用場面等を考慮して目的に応じてそれぞれ単独に、または組み合わせて次の様な補助剤を使用することも出来る。補助剤としては、通常農園芸用薬

剤に使用される界面活性剤、結合剤(例えば、リグニンスルホン酸、アルギン酸、ポリビニルアルコール、アラビアゴム、CMCナトリウム等)、安定剤(例えば、酸化防止用にフェノール系化合物、チオール系化合物または高級脂肪酸エステル等を用いたり、pH調整剤として磷酸塩を用いたり、時に光安定剤も用いる)等を必要に応じて単独または組み合わせて使用出来る。更に場合によっては防菌防黴のために工業用殺菌剤、防菌防黴剤などを添加することもできる。

【0033】補助剤について更に詳しく述べる。乳化、分散、拡展、湿潤、結合、安定化等の目的ではリグニンスルホン酸塩、アルキルベンゼンスルホン酸塩、アルキル硫酸エステル塩、ポリオキシアルキレンアルキル硫酸塩、ポリオキシアルキレンアルキルリン酸エステル塩等のアニオン性界面活性剤、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル、ポリオキシアルキレンアルキルアリールエーテル、ポリオキシアルキレンアルキルアミン、ポリオキシアルキレンアルキルアミド、ポリオキシアルキレンアルキルアミド、ポリオキシアルキレンアルキルチオエーテル、ポリオキシアルキレン脂肪酸エステル、グリセリン脂肪酸エステル、ソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシアルキレンソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシプロピレンポリオキシエチレンブロックポリマー等の非イオン性界面活性剤、ステアリン酸カルシウム、ワックス等の滑剤、イソプロピルヒドロジエンホスフェート等の安定剤、その他メチルセルロース、カルボキシメチルセルロース、カゼイン、アラビアゴム等があげられる。しかし、これらの成分は以上のものに限定されるものではない。

【0034】本発明に係わる農園芸用殺菌剤における一般式(1)で表わされる化合物の含有量は、製剤形態によっても異なるが、通常粉剤では0.05~20重量%、水和剤では0.1~80重量%、乳剤では1~50重量%、フロワブル製剤では1~50重量%、ドライフロワブル製剤では1~80重量%であり、好ましくは、粉剤では0.5~5重量%、水和剤では5~80重量%、粒剤では0.5~8重量%、乳剤では5~20重量%、フロワブル製剤では5~30重量%およびドライフロワブル製剤では5~50重量%である。補助剤の含有量は0~80重量%であり、担体の含有量は、100重量%から有効成分化合物および補助剤の含有量を差し引いた量である。

【0035】本発明組成物の施用方法としては種子消毒、茎葉散布等があげられるが、通常当業者が利用する

どの様な施用方法にても十分な効力を発揮する。施用量および施用濃度は対象作物、対象病害、病害の発生程度、化合物の剤型、施用方法および各種環境条件等によって変動するが、散布する場合には有効成分量としてヘクタール当たり50～1,000gが適当であり、望ましくはヘクタール当たり100～500gである。また水和剤、フロワブル剤または乳剤を水で希釈して散布する場合、その希釈倍率は200～20,000倍が適当であり、望ましくは1,000～5,000倍である。

【0036】本発明の農園芸用殺菌剤は他の殺菌剤、殺虫剤、除草剤および植物成長調節剤等の農薬、土壤改良剤または肥効物質との混合使用は勿論のこと、これらとの混合製剤も可能である。殺菌剤としては例えば、トリアジメホン、ヘキサコナゾール、プロクロラズ、トリフルミゾール等のアゾール系殺菌剤、メタラキシリ、オキサディキシリ等のアシルアラニン系殺菌剤、チオファネットメチル、ペノミル等のベンズイミダゾール系殺菌剤、マンゼブ等のジチオカーバメート系殺菌剤およびテトラクロロイソフタロニトリル、硫黄等があげられ、殺虫剤としては例えば、フェニトロチオン、ダイアジノン、ビリダフェンチオン、クロルビリホス、マラソン、フェントエート、ジメトエート、メチルチオメトン、ブロチオホス、DDVP、アセフェート、サリチオン、EPN等リン系殺虫剤、NAC、MTMC、BPMC、ビリミカーブ、カルボスルファン、メソミル等のカーバメート系殺虫剤およびエトフェンプロックス、ペルメトリン、フェンバレレート等のビレスロイド系殺虫剤等があげられるが、これに限定されるものではない。

## 【0037】

【実施例】次に実施例を挙げて本発明の化合物を更に具体的に説明する。

## 実施例1

N-(2-(2-チエニル)フェニル)-2-クロロニコチン酸アミド(化合物番号1)  
2-クロロニコチン酸0.6gを塩化チオニル5m1とともに1.5時間加熱還流し、減圧濃縮してカルボン酸クロライドを調製した。これをテトラヒドロフラン10m1に溶解し、ビリジン0.53gを添加する。この溶液に2-(2-チエニル)アニリン0.56gのテトラヒドロフラン1m1溶液を加え、室温で1時間攪拌した。反応液を氷水中に排出し、酢酸エチルで抽出、有機層を5%塩酸、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で順次洗浄後、硫酸マグネシウムで乾燥した。減圧濃縮して溶媒を留去し、吸引ろ過して目的物0.71g(収率76%)を得た。融点132～133℃

<sup>1</sup>H-NMR(CDCl<sub>3</sub>, δ値): 7.11～7.19(2H), 7.23(1H), 7.35～7.47(4H), 8.17(dd, J=7.4, 2.2Hz, 1H), 8.46～8.54(3H)

## 【0038】実施例2

N-(2-(5-メチル-2-チエニル)フェニル)-

2-クロロニコチン酸アミド(化合物番号2)

2-クロロニコチン酸0.75gを塩化チオニル6m1とともに1.5時間加熱還流し、減圧濃縮してカルボン酸クロライドを調製した。これをテトラヒドロフラン10m1に溶解し、ビリジン0.53gを添加する。この溶液に2-(5-メチル-2-チエニル)アニリン0.7gのテトラヒドロフラン1m1溶液を加え、室温で1時間攪拌した。反応液を氷水中に排出し、酢酸エチルで抽出、有機層を5%塩酸、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で順次洗浄後、硫酸マグネシウムで乾燥した。減圧濃縮して溶媒を留去し、得られるオイル状物をカラムクロマトグラフィー(酢酸エチル/n-ヘキサン=3/7で溶出)で精製して目的物0.5g(収率42%)を得た。融点117～118℃

<sup>1</sup>H-NMR(CDCl<sub>3</sub>, δ値): 2.54(s, 3H), 6.75(d, J=2.2, 1H), 6.91(d, J=3.6, 1H), 7.20(m, 1H), 7.35～7.44(m, 3H), 8.16(dd, J=7.3, 2.2, 1H), 8.46(m, 2H), 8.60(brs, 1H)

## 【0039】実施例3

N-(2-(2-ビリジル)フェニル)-2-クロロニコチン酸アミド(化合物番号3)

2-クロロニコチン酸0.6gより実施例1と同様にしてカルボン酸クロライドを調製する。これをテトラヒドロフラン10m1に溶解し、ビリジン0.53gを添加し、この溶液に2-(2-ビリジル)アニリン0.52gのテトラヒドロフラン1m1溶液を加え、室温で1時間攪拌した。反応液を氷水中に排出し、酢酸エチルで抽出し、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で洗浄後、硫酸マグネシウムで乾燥した。減圧濃縮して溶媒を留去し、吸引ろ過して目的物0.62g(収率64%)を得た。融点120～121.5℃

<sup>1</sup>H-NMR(CDCl<sub>3</sub>, δ値): 7.24～7.28(m, 3H), 7.34～7.38(m, 1H), 7.47～7.52(m, 1H), 7.71(dd, J=8.1, 1.5, 1H), 7.78(d, J=8.1, 1H), 7.84～7.88(m, 1H), 8.05(dd, J=8.1, 1.5, 1H), 8.45～8.50(m, 2H), 8.68(d, J=8.8, 1H)

## 【0040】実施例4

N-(2-(3-ビリジル)フェニル)-2-クロロニコチン酸アミド(化合物番号4)

アニリン成分として2-(3-ビリジル)アニリンを用いた他は、実施例1と全く同様にして反応を行い、目的物0.52g(収率54%)を得た。融点169～170.5℃

<sup>1</sup>H-NMR(CDCl<sub>3</sub>, δ値): 7.29～7.41(m, 4H), 7.49～7.53(m, 1H), 7.78(dd, J=8.1, 2.2, 1H), 8.11(dd, J=8.1, 2.2, 1H), 8.29(d, J=8.1, 2H), 8.41(m, 1H), 8.58～8.62(m, 2H)

## 【0041】実施例5

N-(2-(4-ビリジル)フェニル)-2-クロロニコチン酸アミド(化合物番号5)

アニリン成分として2-(4-ビリジル)アニリンを用いた他は、実施例1と全く同様にして反応を行い、目的物0.4g(収率42%)を得た。融点161～163

℃

<sup>1</sup>H-NMR(CDCl<sub>3</sub>, δ値): 7.28~7.37( m, 5H), 7.51( m, 1H), 8.09( m, 1H), 8.18(brs, 1H) 8.28(d, J=8.0, 1H), 8.44(dd, J=5.1, 2.2, 1H), 8.66( m, 2H)

## 【0042】実施例6

N-(2-(2-チエニル)フェニル)-1-メチル-3-トリフルオロメチルピラゾール-4-カルボン酸アミド(化合物番号6)  
1-メチル-3-トリフルオロメチルピラゾール-4-カルボン酸0.25gを塩化チオニル3m1とともに1.5時間加熱還流し、減圧濃縮してカルボン酸クロライドを調製した。これをテトラヒドロフラン7m1に溶解し、ピリジン0.2gを添加する。この溶液に2-(2-チエニル)アニリン0.23gのテトラヒドロフラン1m1溶液を加え、室温で1時間攪拌した。反応液を氷水中に排出し、酢酸エチルで抽出、有機層を5%塩酸、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で順次洗浄後、硫酸マグネシウムで乾燥した。減圧濃縮して溶媒を留去し、吸引ろ過して目的物0.36g(収率78%)を得た。

融点170~172℃

<sup>1</sup>H-NMR(CDCl<sub>3</sub>, δ値): 3.96(S, 3H), 7.11~7.25( m, 2H), 7.32~7.46( m, 4H), 7.84(S, 1H), 7.91(brs, 1H), 8.35(d, J=8.0, \*

第2表

\*8, 1H)

## 【0043】実施例7

N-(2-(2-ピリジル)フェニル)-1-メチル-3-トリフルオロメチルピラゾール-4-カルボン酸アミド(化合物番号7)

1-メチル-3-トリフルオロメチルピラゾール-4-カルボン酸0.46gを塩化チオニル3m1とともに1.5時間加熱還流し、減圧濃縮してカルボン酸クロライドを調製した。これをテトラヒドロフラン7m1に溶解し、ピリジン0.2gを添加する。この溶液に2-(2-ピリジル)アニリン0.5gのテトラヒドロフラン1m1溶液を加え、室温で1時間攪拌した。反応液を氷水中に排出し、酢酸エチルで抽出、有機層を飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で洗浄後、硫酸マグネシウムで乾燥した。減圧濃縮して溶媒を留去し、吸引ろ過して目的物0.59g(収率80%)を得た。

【0044】<sup>1</sup>H-NMR(CDCl<sub>3</sub>, δ値): 3.93(S, 3H), 7.10(d, J=8.1, 1H), 7.37~7.48( m, 8H), 8.37(s, 1H)

このような実施例によって製造される本発明の化合物の20いくつかを第2表(表14, 15)に示す。

## 【0045】

## 【表14】

化合物番号	Het	R	融点(℃)
1	2-チエニル	2-クロ-3-ピリジル	132~133
2	5-メチル-2-チエニル	2-クロ-3-ピリジル	117~118
3	2-ピリジル	2-クロ-3-ピリジル	120~121.5
4	3-ピリジル	2-クロ-3-ピリジル	169~170.5
5	4-ピリジル	2-クロ-3-ピリジル	161~163
6	2-チエニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル ピラゾール-4-イル	171.5~173
7	2-ピリジル	1-メチル-3-トリフルオロメチル ピラゾール-4-イル	油
8	2-チエニル	2-クロフェニル	107~108
9	2-チエニル	2-メチル-4-トリフルオロメチル チアゾール-5-イル	103~104
10	2-オキソリル	1-メチル-3-トリフルオロメチル ピラゾール-4-イル	195~198
11	2-オキソリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル チアゾール-5-イル	125~127
12	5-オキソリル	1-メチル-3-トリフルオロメチル ピラゾール-4-イル	132~133
13	5-オキソリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル チアゾール-5-イル	152~153

## 【0046】

## 【表15】

第2表(つづき)

化合物番号	H e t	R	融点(℃)
1 4	2-フリル	1-メチル-3-トリフルオロメチル ピラゾール-4-イル	134~135
1 5	2-フリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル チアゾール-5-イル	129~130
1 6	3-イソキサゾール	2-メチル-4-トリフルオロメチル チアゾール-5-イル	165~167
1 7	4-ピリミジニル	2-メチル-4-トリフルオロメチル チアゾール-5-イル	200~202
1 8	4-ピリミジニル	2-クロロフェニル	139~142
1 9	4-ピリミジニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル ピラゾール-4-イル	192.5~194.5
2 0	5-ピリミジニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル ピラゾール-4-イル	193~195

## 【0047】参考例1

N-(2-イソプロピルフェニル)-2-メチル-4-トリフルオロメチルチアゾール-5-カルボン酸アミド  
(対照化合物A、特開平5-221, 994号公報記載)

カルボン酸として2-メチル-4-トリフルオロメチルチアゾール-5-カルボン酸を、アニリンとして2-イソプロピルアニリンを用いた以外は実施例1と全く同様の方法で合成した。融点114~115℃。

## 【0048】参考例2

N-(2-イソプロピルフェニル)-2-クロロニコチン酸アミド (対照化合物B、特開平5-221, 994号公報記載)

アニリンとして2-イソプロピルアニリンを用いた以外は実施例1と全く同様にして合成した。融点123~124.5℃。

## 製剤例および生理試験例

次に本発明に係わる農園芸用殺菌剤の製剤例および試験例を示す。

## 【0049】製剤例1 粉剤

化合物番号1の化合物3部、ケイソウ土20部、白土30部およびタルク47部を均一に粉碎混合して粉剤100部を得た。

## 【0050】製剤例2 水和剤

化合物番号1の化合物25部、ケイソウ土47部、白土25部、リグニンスルホン酸ナトリウム1部およびアルキルベンゼンスルホン酸ナトリウム2部を均一に粉碎混合して水和剤100部を得た。

## 【0051】製剤例3 水和剤

化合物番号1の化合物50部、タルク40部、ラウリルリン酸ナトリウム5部およびアルキルナフタレンスルホン酸ナトリウム5部を混合し、水和剤100部を得た。

## 【0052】製剤例4 水和剤

化合物番号2の化合物50部、リグニンスルホン酸ナトリウム10部、アルキルナフタレンスルホン酸ナトリウム5部、ホワイトカーボン10部およびケイソウ土25部を混合粉碎し、水和剤100部を得た。

## 【0053】製剤例5 乳剤

化合物番号2の化合物10部、シクロヘキサン10部、キシレン60部およびソルボール(東邦化学製界面活性剤)20部を均一に溶解混合し、乳剤100部を得た。

## 【0054】製剤例6 フロワブル剤

化合物番号2の化合物40部、カルボキシメチルセルロース3部、リグニンスルホン酸ナトリウム2部、ジオクチルスルホサクシネートナトリウム塩1部および水54部をサンドグラインダーで湿式粉碎し、フロワブル剤100部を得た。次に本発明化合物の農園芸用殺菌剤としての効力を試験例によって説明する。なお試験例においては、上記参考例の化合物を対照剤として用いた。

## 【0055】試験例1 インゲン灰色かび病防除試験

温室内で直径7.5cmのプラスチックポットに子葉の展開まで2本ずつ生育させたインゲン(品種: つるなしトップクロップ)に、製剤例3に準じて調製した水和剤を所定濃度に希釈して、4ポット当たり50mlずつ散布した。薬液が乾いた後PDA培地上で培養した灰色かび菌(MBC耐性)から調製した分生胞子懸濁液(1×10<sup>5</sup>個/ml)を子葉上に噴霧接種し、20~23℃、湿度95%以上の温室内で7日間保った。接種7日後、インゲン1葉当たりに灰色かび病の病斑が占める面積を次の指標に従って調査した。結果を第3表(表16、17)に示す。

【0056】なお、対照化合物Aとして、N-(2-イソプロピルフェニル)-2-メチル-4-トリフルオロメチルチアゾール-5-カルボン酸アミド(特開平5-

31

221, 994号公報記載) および対照化合物Bとして、N-(2-イソプロピルフェニル)-2-クロロニコチン酸アミド(特開平5-221, 994号公報記載)を用いた。

【0057】

発病度 0: 発病なし

1: 病斑の面積が5%以下

2: 病斑の面積が5~25%

\* 3: 病斑の面積が25~50%

4: 病斑の面積が50%以上

各処理区および無処理区の平均値を発病度とした。

防除率(%) = (1 - 処理区の発病度 / 無処理区の発病度) × 100

【0058】

【表16】

\*

第3表

化合物番号	有効成分濃度 (ppm)	防除率 (%)
1	200	100
	50	100
2	200	100
	50	100
3	200	100
	50	100
6	200	100
	50	100
7	200	100
	50	100
9	200	100
	50	100
14	200	100
	50	100

【0059】

※※【表17】

第3表(つづき)

化合物番号	有効成分濃度 (ppm)	防除率 (%)
15	200	100
	50	100
対照化合物A	200	90
	50	65
対照化合物B	200	27
	50	0

【0060】試験例2 イチゴ灰色かび病防除試験

温室内で直径9cmの素焼き鉢に結実まで生育させたイチゴ(品種: 女峰)に、製剤例3に準じて調製した水和

剤を所定濃度に希釈して、3ポット当たり50mlずつ

散布した。薬液が乾いた後PDA培地上で培養した灰色かび菌(MBC耐性)から調製した分生胞子懸濁液(1

$\times 10^5$  個/m<sup>2</sup>) を鉢全体に噴霧接種し、20~23°C、湿度95%以上の暗所に1日置いた後20~23°Cの温室に7日間保った。接種8日後、全ての果実について発病の程度を果実1個当たりに灰色かび病の病斑が占める面積を次の指標に従って調査した。結果を第4表(表18、19)に示す。対照化合物AおよびBは試験例1と同様である。

【0061】

発病度 0: 発病なし

\* 1: 病斑の面積が5%以下  
2: 病斑の面積が5~25%  
3: 病斑の面積が25~50%  
4: 病斑の面積が50%以上

各処理区および無処理区の平均値を発病度とした。  
防除率(%) = (1 - 処理区の発病度 / 無処理区の発病度) × 100

【0062】

【表18】

第4表

化合物番号	有効成分濃度 (ppm)	防除率 (%)
1	200	100
	50	100
2	200	100
	50	100
3	200	100
	50	100
6	200	100
	50	100
7	200	100
	50	100
9	200	100
	50	100
14	200	100
	50	100

【0063】

※※【表19】

第4表(つづき)

化合物番号	有効成分濃度 (ppm)	防除率 (%)
15	200	100
	50	100
対照化合物A	200	85
	50	50
対照化合物B	200	23
	50	0

以上の試験例に示されるように、本発明の一般式(1)で表される化合物はインゲン、イチゴの灰色かび病に対し優れた病害防除効果を示す一方、類似の構造を有する対照化合物A、Bはその効果がかなり劣り、低薬量では

ほとんどその効果が認められなかった。

【0064】

【発明の効果】本発明の一般式（1）で表される化合物

はインゲン、イチゴの灰色かび病に対し優れた病害防除効果を示し、農園芸用殺菌剤として有用である。

フロントページの続き

(51) Int. Cl. <sup>6</sup>	識別記号	府内整理番号	F I	技術表示箇所
A 0 1 N	43/56	A		
	43/58	A		
	43/60			
	43/76			
	43/78	B		
	43/80	1 0 1		
		1 0 2		
C 0 7 D	213/40			
	213/61			
	237/08			
	239/26			
	241/12			
	261/08			
	263/32			
	277/28			
	277/32			
	277/56			
	307/52			
	405/12	2 1 3		
		2 3 1		
	409/12	2 1 3		
		2 3 1		
		3 0 7		
	413/12	2 1 3		
		2 3 1		
		3 0 7		
		3 3 3		
	417/12	2 6 3		
		3 0 7		
		3 3 3		

(72)発明者 前田 直

千葉県茂原市東郷1144番地 三井東圧化学  
株式会社内

(72)発明者 松永 浩文

千葉県茂原市東郷1144番地 三井東圧化学  
株式会社内

(72)発明者 勝田 裕之

千葉県茂原市東郷1144番地 三井東圧化学  
株式会社内

(72)発明者 柳瀬 勇次

千葉県茂原市東郷1144番地 三井東圧化学  
株式会社内

(72)発明者 貴志 淳郎

千葉県茂原市東郷1144番地 三井東圧化学  
株式会社内

(72)発明者 下鳥 均

千葉県茂原市東郷1144番地 三井東圧化学  
株式会社内

(72)発明者 稲見 俊一  
千葉県茂原市東郷1144番地 三井東圧化学  
株式会社内